

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2005 年 9 月 1 日 (01.09.2005)

PCT

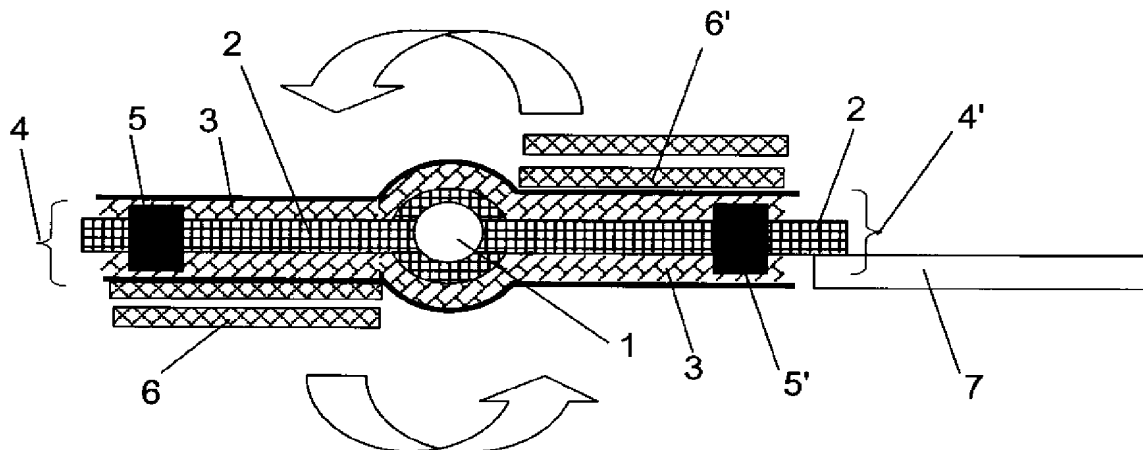
(10) 国際公開番号  
WO 2005/079956 A1

- (51) 国際特許分類<sup>7</sup>: B01D 53/22, 63/10 (72) 発明者; および  
(21) 国際出願番号: PCT/JP2005/002590 (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 谷原 望 (TANI-HARA, Nozomu) [JP/JP]; 〒7558633 山口県宇部市大字小串 1 9 7 8-1 0 宇部興産株式会社 宇部ケミカル工場内 Yamaguchi (JP).  
(22) 国際出願日: 2005 年 2 月 18 日 (18.02.2005) (74) 代理人: 伊藤 克博, 外 (ITO, Katsuhiko et al.); 〒1040032 東京都中央区八丁堀 3 丁目 1 1 番 8 号 ニチト八丁堀ビル 4 階 Tokyo (JP).  
(25) 国際出願の言語: 日本語 (74) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, (26) 国際公開の言語: 日本語  
(30) 優先権データ: 特願2004-042568 2004 年 2 月 19 日 (19.02.2004) JP (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE,  
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 宇部興産株式会社 (UBE INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒7558633 山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 番地の 9 6 Yamaguchi (JP).

[続葉有]

(54) Title: METHOD FOR SEPARATING/COLLECTING OXYGEN-RICH AIR FROM AIR, ITS APPARATUS AND GAS SEPARATING MEMBRANE MODULE

(54) 発明の名称: 空気から酸素富化空気を分離回収する方法、その装置、および気体分離膜モジュール



(57) Abstract: A method for separating/collecting oxygen-rich air from the air characterized in that a gas separating membrane module is constituted by alternately winding a laminate formed by sandwiching a permeation side spacer to serve as a permeated gas channel communicating with the hollow section of a core tube for collecting/discharging permeated gas between two flat film-like gas separating membranes and a supply side spacer to serve as a material gas channel spirally around the core tube such that they are superimposed on each other, and while feeding air into the material gas channel by an air supply means such that the values obtained by dividing the maximum fed-air quantity and maximum static pressure by the effective membrane area of the gas separating membrane are not larger than 100 m<sup>3</sup>/min·m<sup>2</sup> and 4000 Pa/m<sup>2</sup>, respectively, the pressure in the hollow section of the core tube is reduced to 95 kPaA (absolute pressure) or below by a pressure reducing means, thus separating/collecting oxygen-rich air from the hollow section of the core tube. Oxygen-rich air can be separated/collected from air by this method with high separation efficiency.

(57) 要約: 透過気体を集めて排出する芯管の中空部に連通した透過気体流路となる透過側スペーサを 2 枚の平膜状気体分離膜の間に挟んで一組とした積層体と、原料気体流路となる供給側スペーサとを、交互に重なるように前記芯管の周りにスパイラル状に巻回して構成した気体分離膜モジュールを用い、最大送風量および最大静圧を気体分離

[続葉有]



WO 2005/079956 A1



SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US,  
UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML,  
MR, NE, SN, TD, TG).

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護  
が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA,  
SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ,  
BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE,  
BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU,  
IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR),

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される  
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語  
のガイダンスノート」を参照。

膜の有効膜面積で割った値がそれぞれ  $100\text{ m}^3/\text{min} \cdot \text{m}^2$  以下および  $4000\text{ Pa}/\text{m}^2$  以下となるような送風手段によって原料気体流路内に空気を流しながら、芯管の中空部を減圧手段によって  $95\text{ kPa}$  A (絶対圧) 以下に減圧することによって、芯管の中空部から酸素富化空気を分離回収することの特徴とする空気から酸素富化空気を分離回収する方法が開示される。この方法により、空気から酸素富化空気を分離効率よく分離回収することができる。

## 明 細 書

### 空気から酸素富化空気を分離回収する方法、その装置、および気体分離膜モジュール

#### 技術分野

- [0001] 本発明は、平膜状気体分離膜を芯管の周りに巻回してなるスパイラル型の気体分離膜モジュールを用いて空気から酸素富化空気を分離効率よく分離回収する方法に関し、更に空気から酸素富化空気を分離回収するために好適な簡便な構造からなる気体分離膜モジュールに関する。

#### 背景技術

- [0002] 一般に平膜状気体分離膜を芯管の周りに巻回してなるスパイラル型の気体分離膜モジュールは、透過気体流路を確保するための透過側スペーサを平膜状気体分離膜で挟んで、芯管の中空部に透過気体流路が連通するように芯管に気体分離膜を接着し、供給気体流路となる供給側スペーサと共に芯管の周りに巻回して構成されている。

このようなスパイラル型の気体分離膜モジュールは構造が簡単であり製造も容易であるが、中空系型の気体分離膜モジュールなどに比べて分離効率が悪くなりまた分離回収気体の濃度が低くなるために実用上は必ずしも好適に用いられていない。

特許文献1には、空気分離を目的としたスパイラル型の気体分離膜モジュールにおいて、圧力損失による性能低下を防ぐために、透過気体流路の厚みを巻終わりから巻始めにいたる過程で順次厚くすることが開示されている。しかしながら、この分離膜モジュールは加圧した空気を供給して高濃縮窒素を分離回収することを目的としたものである。供給側をおおよそ大気圧とし透過側を減圧にして空気から酸素富化空気を分離回収する方法については記載がない。

気体分離膜モジュールを用いて空気から酸素富化空気を分離回収するときには窒素富化空気の排出を必ず伴う。気体分離膜モジュールに加圧した空気を供給する方法では、透過側でほぼ大気圧の酸素富化空気を得ると同時に非透過側で加圧状態の窒素富化空気を得ることになる。すなわち、加圧法の場合は、結果として併産さ

れる窒素富化空気までもあらかじめ供給空気として圧縮しなければならない。空気中の窒素は酸素に比べて4倍程度あるから、この窒素を含む供給空気を圧縮のための動力を考慮すると、加圧法はエネルギー的に極めて非効率で不利である。更に、スパイラル型の気体分離膜モジュールの供給側に圧力をかけるには、分離膜モジュールを供給側、非透過側、透過側の開口を有する耐圧容器内に収納されたものにするか、少なくとも分離膜モジュールの最外殻を相応の耐圧性を持った構造、部材にしなければならない。更に加えて、供給側の圧力を維持するために、気体流路の所定位置にバルブなどの圧力調整手段を付けることが必要になるなど、余分な部品や構造が必要になる。

[0003] 特許文献1:特開平6-262026

#### 発明の開示

#### 発明が解決しようとする課題

[0004] 本発明の目的は、スパイラル型の気体分離膜モジュールを用いて空気から酸素富化空気を分離効率よく分離回収する方法、および、空気から酸素富化空気を分離効率よく分離回収する方法に好適に用いることができるスパイラル型の気体分離膜モジュールを提供することである。

#### 課題を解決するための手段

[0005] 本発明は、透過気体を集めて排出する芯管の中空部に連通した透過気体流路となる透過側スペーサを2枚の平膜状気体分離膜の間に挟んで一組とした積層体と、原料気体流路となる供給側スペーサとを、交互に重なるように前記芯管の周りにスパイラル状に巻回して構成した気体分離膜モジュールを用い、最大送風量および最大静圧を気体分離膜の有効膜面積で割った値がそれぞれ $100\text{m}^3/\text{min}\cdot\text{m}^2$ 以下および $4000\text{Pa}/\text{m}^2$ 以下となるような送風手段によって原料気体流路内に空気を流しながら、芯管の中空部を減圧手段によって $95\text{kPaA}$  (絶対圧) 以下に減圧することによって、芯管の中空部から酸素富化空気を分離回収することを特徴とする空気から酸素富化空気を分離回収する方法に関する。

[0006] 前記気体分離膜モジュールは、透過気体を集めて排出する芯管の中空部に連通した透過気体流路となる透過側スペーサを2枚の平膜状気体分離膜の間に挟んで

一組とした積層体を複数組備え、前記複数組の各積層体と原料気体流路となる供給側スペーサとを、交互に重なるように前記芯管の周りにスパイラル状に巻回して構成した気体分離膜モジュールであることが好ましい。

前記気体分離膜モジュールの透過側スペーサと供給側スペーサとの厚さの比は、 $1:2 \sim 1:10$ である気体分離膜モジュールであることが好ましい。

[0007] さらに、本発明は、透過気体を集めて排出する芯管の中空部に連通した透過気体流路となる透過側スペーサを2枚の平膜状気体分離膜の間に挟んで一組とした積層体を複数組備え、前記複数組の各積層体と原料気体流路となる供給側スペーサとを交互に重なるように前記芯管の周りにスパイラル状に巻回して構成され、更に供給側スペーサと透過側スペーサとの厚さの比が $1:2 \sim 1:10$ であるように構成したことを特徴とする、原料気体流路に空気を供給し芯管の中空部を減圧にして前記中空部から酸素富化空気を分離回収するための気体分離膜モジュールに関する。

#### 発明の効果

[0008] 本発明によって、簡便なスパイラル型の気体分離膜モジュールを用いて空気から酸素富化空気を分離効率よく分離回収することができる。

#### 図面の簡単な説明

[0009] [図1]本発明の気体分離膜モジュールの一例のモジュールを展開したときの断面の概略図である。

[図2]図1の展開したときの断面図を上から眺めたときの概略図である。

[図3]本発明の分離膜モジュールを用いて空気から酸素富化空気を分離回収する方法の具体的な一例を説明するための模式図である。

#### 符号の説明

[0010] 1:芯管  
2:透過側スペーサ  
3:平膜状気体分離膜  
4、4':透過側スペーサを2枚の平膜状気体分離膜の間に挟んで一組とした積層体  
5、5':接着剤  
6、6':供給側スペーサ(図中では2枚用いたときを示している)

7:外フィルム

10:分離膜モジュール

11:ファン

12:カバー(ケース)

13:真空ポンプ

14:圧力計

15:バッファータンク

### 発明を実施するための最良の形態

[0011] 本発明は、簡便な構造を有するスパイラル型の気体分離膜モジュールを用いて空気から酸素富化空気を分離回収する方法について種々検討した結果、スパイラル型の気体分離膜モジュールに、有効膜面積あたり所定量の空気をおおよそ大気圧で供給し、更に気体分離膜の透過側を所定圧に減圧にすることによって、極めて分離効率よく酸素富化空気を分離回収できることを見出して得られたものである。

[0012] 本発明で用いられる気体分離膜モジュールは、スパイラル型の気体分離膜モジュールであって、具体的には、透過気体を集めて排出する芯管の中空部に連通した透過気体流路となる透過側スペーサを2枚の平膜状気体分離膜の間に挟んで一組とした積層体と、原料気体流路となる供給側スペーサとを、交互に重なるように前記芯管の周りにスパイラル状に巻回して構成されている。

図1は、本発明の気体分離膜モジュールの一例のモジュールを展開したときの断面の概略図を示したものである。芯管1は中空部を有し透過気体を集めてモジュール外へ排出する役割を有する。透過側スペーサ2を2枚の平膜状気体分離膜3の間に挟んで一組とした積層体4、4'が芯管の左右にそれぞれ延びている。各積層体4、4'内には透過側スペーサ2によって透過気体流路が確保され、透過気体流路が芯管1の中空部と連通するように芯管1に取り付けられている。これらの積層体4、4'内の透過側スペーサ2が形成する透過気体流路は、積層体4、4'の周辺端部では接着剤5、5'によって封止されており、芯管1の中空部へ連通する開口部を除いて、平膜状気体分離膜3によって外側の空間とは隔絶されている。これらの積層体4、4'に原料気体流路を確保する供給側スペーサ6、6'を図1のように配置し、これらが交互

に重なるように芯管1の周りにスパイラル状に巻回される。この巻回は図1中の矢印で示してある。巻回の最外殻には実質的に気体を透過しない外フィルム7が巻回される。供給側スペーサ6、6'は積層体4、4'や外フィルム7によって芯管1の長手方向の両端部を除いて隔絶される。この結果、原料気体流路は芯管1の長手方向の両端部のみが開口し、また透過気体流路は芯管1の中空部へ連通し、相互に平膜状気体分離膜3を挟んで隔絶された空間を形成している。また、図2は図1の断面を上から眺めたときの概略図である。

[0013] 本発明の方法および装置においては、原料気体流路の芯管の長手方向の両端部の開口のうち一方の開口から空気を供給して原料気体流路内を流し、他方の開口から排出する。空気が原料気体流路を流れる際、空気が分離膜と接触し、供給側と透過側の圧力差に基づいて空気中の酸素ガスが気体分離膜を選択的に透過する。このために透過気体流路には選択的に透過した酸素ガスの濃度が高くなった酸素富化空気が流れ、芯管の中空部に導かれてモジュール外に排出される。

本発明では原料気体流路に空気を流すために、従来のような圧縮装置で加圧された空気を送る必要はなく、ファン等の簡単な送風装置を使用する。送風手段の能力としては、最大送風量が、気体分離膜の有効膜面積(以下、単に膜面積ともいう。)あたり $100\text{m}^3/\text{min}\cdot\text{m}^2$ 以下、好ましくは $10\text{m}^3/\text{min}\cdot\text{m}^2$ 以下、特に好ましくは $4\text{m}^3/\text{min}\cdot\text{m}^2$ 以下であり、且つ最大静圧が気体分離膜の有効膜面積あたり $4000\text{Pa}/\text{m}^2$ 以下、好ましくは $600\text{Pa}/\text{m}^2$ 以下、特に好ましくは $150\text{Pa}/\text{m}^2$ 以下となるような送風手段を使用する。つまり、送風能力としてあまり強力ではないこのような送風手段によって空気が原料気体流路(供給側スペーサ)内に流されるので、運転時における原料気体流路内での空気の圧力はおおよそ大気圧である。従って、原料気体流路を構成する供給側スペーサは、このような送風手段で送風できる程度に圧力損失が小さい必要がある。即ち、原料気体流路における圧力損失は、膜面積あたり、 $4000\text{Pa}/\text{m}^2$ 未満である必要があり、好ましくは $600\text{Pa}/\text{m}^2$ 未満であり、さらに好ましくは $150\text{Pa}/\text{m}^2$ 以下である。

気体分離膜の有効膜面積あたりの最大送風量が $100\text{m}^3/\text{min}\cdot\text{m}^2$ かつ最大静圧が $4000\text{Pa}/\text{m}^2$ を越えるような送風手段については、送風が所要動力の少ないファ

ンやブロアなどでは対応できなくなり、所要動力の大きいコンプレッサなどを必要とするようになるのでエネルギー的に不利となるから好ましくない。

また、送風量としては、分離膜面での酸素分圧が低くならないように所定の流通量が必要であり、好ましくは供給側の排出空気の酸素濃度が1%以下とならないだけの空気を供給すればよい。

- [0014] 送風手段は、最大静圧が上記のものであれば特に限定はないが、例えばファンやブロアを好適に挙げることができる。これらではおおよそ大気圧の送風が可能である。本発明においては、送風手段は吸引でも押込でもよい。
- [0015] 一方、透過側では、芯管の中空部を減圧手段によって95kPaA以下特に60kPaA以下に減圧することによって芯管の中空部から酸素富化空気を分離回収することができる。減圧手段の能力を示す到達圧力は、小さいほうが酸素富化の効果は大きい。が、装置も大きくなりがちなので、例えば20PaA以上であり、例えば35PaA以上でも十分である。装置としては、所定圧力に減圧できるものであれば特に限定はなく、通常の真空ポンプを好適に用いることができる。真空ポンプを用いた場合は真空ポンプの排出口から酸素富化空気を回収する。
- [0016] 酸素を選択的に透過する気体分離膜モジュールの供給側と透過側とに圧力差を設け空気から酸素富化空気を回収する方法において、加圧法の場合は、前述のとおり、結果として併産される窒素富化空気までもあらかじめ供給空気として圧縮しなければならないからエネルギー的に極めて非効率で不利である。更に、スパイラル型の気体分離膜モジュールの供給側に圧力をかけるには、分離膜モジュールを供給側、非透過側、透過側の開口を有する耐圧容器内に収納されたものにするか、少なくとも分離膜モジュールの最外殻を相応の耐圧性を持った構造、部材にし、更に加えて、供給側の圧力を維持するために、気体流路の所定位置にバルブなどの圧力調整手段を付けることが必要になるなど、余分な部品や構造が必要になる。
- [0017] 一方、おおよそ大気圧になるような圧力で供給側に空気を供給し、透過側を減圧する本発明の方法では、目的とする酸素富化空気のみを減圧すればよいからエネルギー的に極めて効率よく有利である。さらに、分離膜モジュールを供給側、非透過側、透過側の開口を有する耐圧容器内に収納したり、分離膜モジュールの最外殻を相



応の耐圧性を持った構造、部材にしたりする必要がなく、供給側の圧力を維持するためのバルブなどの圧力調整手段も必要がなくなるから、スパイラル型分離膜モジュールを極めて簡便な構造として用いることが可能になる。

[0018] そして、簡便なスパイラル型の分離膜モジュールを用いて、おおよそ大気圧になるような圧力で供給側に空気を供給し、透過側を減圧する方法では、おおよそ大気圧で供給された空気が流れる気体分離膜モジュールの原料気体流路の抵抗を小さくすることが分離効率を向上させるうえで極めて重要である。もちろん、透過側もより減圧された方が分離効率が向上するので透過気体流路の抵抗も小さくなるような構造が望ましい。

[0019] 本発明の方法および装置においては、透過気体を集めて排出する芯管の中空部に連通した透過気体流路となる透過側スペーサを2枚の平膜状気体分離膜の間に挟んで一組とした積層体を複数組、好ましくは2〜8組程度特に2〜4組備え、前記複数組の各積層体と原料気体流路となる供給側スペーサとを、交互に重なるように前記芯管の周りにスパイラル状に巻回して構成した気体分離膜モジュールを用いることが好適である。複数組の積層体で構成すると、同じ有効膜面積の1組の積層体だけで巻回した場合に比べて分離効率が向上する。1組の積層体だけで巻回した場合は、積層体中の透過気体流路が芯管の中空部から比較的長い距離を持ち、その全流路を減圧するために圧力損失が生じることになり、分離効率が低下すると考えられる。

[0020] さらに、使用する気体分離膜モジュールの透過側スペーサと供給側スペーサとの厚さの比が1:2〜1:10特に1:3〜1:9更に1:4〜1:7であることが、分離効率を向上させるうえで特に好適である。これらのスペーサの厚みは透過気体流路と供給気体流路の隙間の大きさを規定するから、本発明においては、おおよそ大気圧で流れる供給気体流路の隙間を減圧状態になる透過気体流路の隙間に対して2〜10倍特に3〜9倍更に4〜7倍に広げることを意味する。供給側スペーサとの厚さが透過側スペーサの厚さに対して2倍未満であると、分離効率を上げることが難しい。また供給側スペーサとの厚さが透過側スペーサの厚さに対して10倍を越えると、分離効率は良好であるが飽和して更に効率が向上しないし、分離膜モジュールとして大型になり

コンパクト性が失われる。尚、ここで言うスペーサの厚みは上述のとおり流路隙間を意味するものであり、図1のように供給側スペーサを2枚使用した場合には、スペーサ厚みとしては2枚分の合計厚さである。また、圧力損失等の観点から、供給側スペーサの厚み自体も重要であり、例えば0.6mm以上、好ましくは0.9mm以上、さらに好ましくは1.2mm以上である。またコンパクト性を考慮すると共に分離膜、透過側スペーサ、供給側スペーサなどの積層体をスパイラル状に巻回してモジュール化するときの成形性を考慮すると、通常は10mm以下が好ましく、さらに5mm以下が好ましく、特に3mm以下が好ましい。

[0021] 本発明の分離膜モジュールは、以上説明した空気から酸素富化空気を分離回収する方法に特に好適に用いられる分離膜モジュールであって、透過気体を集めて排出する芯管の中空部に連通した透過気体流路となる透過側スペーサを2枚の平膜状気体分離膜の間に挟んで一組とした積層体を複数組備え、前記複数組の各積層体と原料気体流路となる供給側スペーサとを交互に重なるように前記芯管の周りにスパイラル状に巻回して構成され、更に供給側スペーサと透過側スペーサとの厚さの比が1:2〜1:10であるように構成したことを特徴とする気体分離膜モジュールである。

[0022] 気体分離膜としては、窒素ガスに比べて酸素ガスを選択的に透過する平膜状の膜であれば特に限定はないが、25℃における酸素ガスの透過速度が $1 \times 10^{-4} \text{cm}^3 (\text{STP}) / \text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg}$ 以上、酸素ガスと窒素ガスとの透過速度比( $P'_{\text{O}_2} / P'_{\text{N}_2}$ )が1.5以上であることが好ましい。例えばポリエチレンテレフタレートやセルロースなどのポリマーからなる不織布からなる支持体にポリエーテルイミドやポリフッ化ビニリデンなどのポリマーからなる多孔質体及びその表面にシリコンゴムからなる分離層を積層した非対称複合分離膜を好適に挙げることができる。

[0023] 芯管は、中空部と、中空部と透過気体流路とが連通するために開口部と、中空部から透過気体が排出するための開口部とを有する。中空部と透過気体流路とが連通するために開口部は例えば溝状であってもよく、一列に配列された複数の孔であっても構わない。中空部から透過気体が排出するための開口部も特に限定はないが、通常は芯管の一方又は両方の端部を開口したものである。また芯管は分離膜や透過側ス

ペーサや供給側スパーサをスパイラルに巻回するときの芯棒の役割があるから、適当な強度が必要である。このためポリマーや金属などによって好適に形成される。また特に限定されないが通常は円柱形状が好適に用いられる。

[0024] 供給側スパーサや透過側スパーサは、供給気体流路や透過気体流路を空間として確保するために用いられるものである。したがって、両側を膜で挟んだときに気体が流れる一定の厚さを持った空間が確保でき得るものであれば特に限定されない。例えば、ポリオレフィンやポリエステルやナイロンなどのポリマーで成形されたメッシュ、連通孔からなる多孔質材料、などを好適に挙げることができる。また、圧力損失が生じないように、メッシュの開口径、連通孔径は、形状を保持できる範囲で大きいほうが好ましく、例えば、線径が0.02から3mm程度の糸を用いた編物や織物からなるメッシュが好適に用いられる。

[0025] 外フィルムは、スパイラルに巻回した最外殻に配置して外部と内部とを隔絶するためのもので、気体を実質的に透過させない例えば厚さが0.1〜3mm程度のポリエチレンやポリプロピレンやポリエステルやナイロンなどが用いられ、特に片面に粘着材を有したフィルムが好適である。また、筒状のフィルムをスパイラルに巻回した最外殻にかぶせる格好で利用するのもよい。また、本発明の気体分離膜モジュールでは積層体の周囲を封止するために接着剤が使用される。封止や接着のために通常用いられる、例えばポリウレタン系やエポキシ樹脂系などの接着剤が好適に用いられる。

[0026] 次に、空気から酸素富化空気を分離回収する具体例について図3の模式図によって更に詳しく説明する。

図3において、分離膜モジュール10の長手方向の一方の端部にファン11とカバー(ケース)12が設けられ、実線矢印の方向に空気を吸引している。この吸引量は予め設定されており、分離膜モジュール10のファン11が接続された端部とは反対の端部の原料気体流路の開口径から、分離膜モジュール10の有効膜面積あたりの供給量が $100\text{m}^3/\text{min}\cdot\text{m}^2$ 以下且つ静圧が $4000\text{Pa}/\text{m}^2$ 以下になるようにして空気が供給される。分離膜モジュール10にファン11が設けられた側の芯管1の端部は封止されている。分離膜モジュール10のファン11が設けられた側とは反対側の芯管1の端部は真空ポンプ13と接続されており、圧力計14で減圧度が測定される。真空ポンプ13の

排出口からは酸素富化空気が破線矢印方向に排出され、必要に応じてバッファータンク15を経由して分離回収される。

## 実施例

[0027] 以下、実施例によって本発明を更に詳細に説明する。なお、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

[0028] [参考例1]

平膜状気体分離膜としてポリエチレンテレフタレート不織布(支持体)にポリエーテルイミド多孔質膜及びその表面にシリコンゴム分離層を積層した厚さが0.15mmで、25℃における酸素ガスの透過速度が $8 \times 10^{-4} \text{cm}^3 (\text{STP}) / \text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg}$ 、窒素ガスに対する酸素ガスの透過速度比が1.8倍の分離性能を有する非対称複合分離膜、供給側スペーサとして厚さ0.5mmのポリエチレン製成形メッシュ(1枚のみ使用)、透過側スペーサとして厚さ0.5mmのポリエチレンテレフタレート製成形メッシュ、芯管として円柱形であって長さ298mm外径17.2mmであり内部に内径9.5mmの中空部を該中空部と外部を連通させる内径2.85mmの12個の孔を有したABS樹脂製で一端が封止され他端が開口したもの、外フィルムとして片面に粘着材を有した厚さ1.5mmのポリエチレン製フィルムを用いて、透過側スペーサを平膜状気体分離膜に挟んで一組とした積層体は1組(幅264mm、芯管からの長さは650mmで膜全体の長さは表裏合わせて1300mmの積層体1枚)とし、その端部を芯管に透過気体通路が芯管の中空部と連通するように取り付け、供給側スペーサを交互に重なるように芯管の周りにスパイラル状に巻回して有効膜面積が $0.2 \text{m}^2$ のスパイラル型の分離膜モジュールを作成した。

この分離膜モジュールを図3に示すようにして酸素富化空気の分離回収を行った。ファンは最大流量が $0.9 \text{m}^3 / \text{min}$ 、最大静圧が25Paの能力を有するもの、真空ポンプは排気速度 $14 \text{L} / \text{min}$ 、到達圧力24kPaAのものを用いた。バッファータンクとして内寸で径42mm長さ440mmの円筒形タンクを用い、バッファータンクを経由して排出される酸素富化空気の流量と酸素濃度とを測定した。流量測定は浮遊式流量計、酸素濃度はジルコニア式酸素濃度計を用いた。

結果を表1に示した。この例は、透過側スペーサと供給側スペーサの厚さの比が1:

1であるが、回収されたガスの酸素濃度は21%であって、酸素富化空気を得ることができなかった。供給側スパーサの厚さが小さいために圧損が大きくなったこと及び供給量が少ないことが酸素富化できなかった原因と考えられた。

[0029] 〔実施例1〕

供給側スパーサを厚さ1.5mmのポリエチレン製成形メッシュを用いたこと以外は参考例1と同様にして酸素富化空気の分離回収を行った。結果を表1に示した。この例は、透過側スパーサと供給側スパーサの厚さの比が1:3であるが、回収されたガスの酸素濃度は24%であって、分離効率よく酸素富化空気を得ることができた。

[0030] 〔実施例2〕

透過側スパーサを平膜状気体分離膜に挟んで一組とした積層体を2組(幅264mm、芯管からの長さ325mmで膜全体の長さは表裏合わせて長さ650mmの積層体2枚)としたこと以外は実施例1と同様にして酸素富化空気の分離回収を行った。結果を表1に示した。この例は、透過側スパーサと供給側スパーサの厚さの比が1:3で、積層体が2組であるが、回収されたガスの酸素濃度は25%であって、実施例1よりも更に分離効率よく酸素富化空気を得ることができた。

[0031] 〔参考例2〕

平膜状気体分離膜としてポリエチレンテレフタレート不織布(支持体)にポリエーテルイミド多孔質膜及びその表面にシリコーンゴム分離層を積層した厚さが0.15mmで、25℃における酸素ガスの透過速度が $8 \times 10^{-4} \text{ cm}^3 (\text{STP}) / \text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg}$ 、窒素ガスに対する酸素ガスの透過速度比が1.8倍の分離性能を有する非対称複合分離膜、供給側スパーサとして厚さ0.5mmのポリエチレン製成形メッシュ、透過側スパーサとして厚さ0.5mmのポリエチレンテレフタレート製成形メッシュ、芯管として円柱形であって長さ298mm外径17.2mmであり内部に内径9.5mmの中空部を該中空部と外部を連通させる内径2.85mmの12個の孔を有したABS樹脂製で一端が封止され他端が開口したもの、外フィルムとして片面に粘着材を有した厚さ1.5mmのポリエチレン製フィルムを用いて、透過側スパーサを平膜状気体分離膜に挟んで一組とした積層体は2組(幅264mm、芯管からの長さ425mmで膜全体の長さは表裏合わせて850mmの積層体2枚)とし、その端部を芯管に透過気体通路が芯管

の中空部と連通するように取り付け、供給側スパーサを交互に重なるように芯管の周りにスパイラル状に巻回して有効膜面積が $0.3\text{m}^2$ のスパイラル型の分離膜モジュールを作成した。

この分離膜モジュールを用いて、参考例1と同様にして酸素富化空気の分離回収を行った。その結果を表1に示した。この例は、透過側スパーサと供給側スパーサの厚さの比が1:1である。回収されたガスの酸素濃度は21%であって、酸素富化空気を得ることができなかった。供給側スパーサの厚さが小さいために圧損が大きくなったこと及び供給量が少ないことが酸素富化できなかった原因と考えられた。

[0032] 〔実施例3〕

供給側スパーサを厚さ1.5mmのポリエチレン製成形メッシュを2枚重ねて使用したこと以外は参考例1と同様にして酸素富化空気の分離回収を行った。結果を表1に示した。この例は、透過側スパーサと供給側スパーサの厚さの比が1:6である。回収されたガスの酸素濃度は26%であって、分離効率よく酸素富化空気を得ることができた。

[0033] 〔実施例4〕

供給側スパーサを厚さ1.5mmのポリエチレン製成形メッシュを3枚重ねて使用したこと以外は参考例1と同様にして酸素富化空気の分離回収を行った。結果を表1に示した。この例は、透過側スパーサと供給側スパーサの厚さの比が1:9である。回収されたガスの酸素濃度は27%であって、分離効率よく酸素富化空気を得ることができた。

[0034] 〔実施例5〕

平膜状気体分離膜としてポリエチレンテレフタレート不織布(支持体)にポリエーテルイミド多孔質膜及びその表面にシリコーンゴム分離層を積層した厚さが0.15mmで、25℃における酸素ガスの透過速度が $1.6 \times 10^{-3} \text{cm}^3(\text{STP}) / \text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg}$ 、窒素ガスに対する酸素ガスの透過速度比が1.8倍の分離性能を有する非対称複合分離膜、供給側スパーサとして厚さ2.2mmのポリエチレン製成型メッシュ、透過側スパーサとして厚さ1.0mmのポリエチレンテレフタレート製成型メッシュ、芯管として円柱形であって長さ298mm外径17.2mmであり内部に内径9.5mmの中空部

を該中空部と外部を連通させる内径2.85mmの12個の孔を有したABS樹脂製で一端が封止され他端が開口したもの、外フィルムとして片面に粘着材を有した厚さ1.5mmのポリエチレン製フィルムを用いて、透過側スパーサを平膜状気体分離膜に挟んで一組とした積層体は1組(幅264mm、芯管からの長さは425mmで膜全体の長さは表裏合わせて830mmの積層体1枚)とし、その端部を芯管に透過気体通路が芯管の中空部と連通するように取り付け、供給側スパーサを交互に重なるように芯管の周りにスパイラル状に巻回して有効膜面積が0.17m<sup>2</sup>のスパイラル型の分離膜モジュールを作製した。

この分離膜モジュールを用いて、参考例1と同様にして酸素富化空気の分離回収を行った。その結果を表1に示した。この例は透過側スパーサと供給側スパーサの厚さの比が1:2.2である。回収されたガスの酸素濃度は26%であって、分離効率よく酸素富化空気を得ることができた。

[0035] 〔実施例6〕

分離膜モジュールは実施例5のものを、ファンは最大流量が0.4m<sup>3</sup>/min、最大静圧が93Paの能力を有するものを用いたこと以外は、参考例1と同様にして酸素富化空気の分離回収を行った。結果を表1に示した。回収されたガスの酸素濃度が27%であって、分離効率よく酸素富化空気を得ることができた。

[0036] 以上の結果を表1と、各実施例で使用したファンの能力を表2にまとめて示す。

[0037] [表1]

表 1

	分離膜モジュール			酸素富化空気の分離回収	
	有効膜面積 ( $\text{m}^2$ )	透過側スぺースと分離膜とからなる積層体の組数	透過側スぺースと供給側スぺースとの厚みの比	酸素富化空気量 (NL/min)	酸素富化空気の酸素濃度 (%)
参考例 1	0.20	1	1 : 1	3.1	21
実施例 1	0.20	1	1 : 3	3.2	24
実施例 2	0.20	2	1 : 3	3.4	25
参考例 2	0.30	2	1 : 1	4.1	21
実施例 3	0.30	2	1 : 6	4.2	26
実施例 4	0.30	2	1 : 9	4.2	27
実施例 5	0.17	1	1 : 2.2	4.6	26
実施例 6	0.17	1	1 : 2.2	4.6	27

[0038] [表2]

表 2 用いたファンの最大送風量とファンの最大静圧

	用いたファン			
	最大送風量 ( $\text{m}^3/\text{min}$ )	最大静圧 (Pa)	有効膜面積当たりの最大送風量 ( $\text{m}^3/\text{min} \cdot \text{m}^2$ )	有効膜面積当たりの最大静圧 ( $\text{Pa}/\text{m}^2$ )
参考例 1	0.9	25	4.5	125
実施例 1	0.9	25	4.5	125
実施例 2	0.9	25	4.5	125
参考例 2	0.9	25	3.0	83
実施例 3	0.9	25	3.0	83
実施例 4	0.9	25	3.0	83
実施例 5	0.9	25	5.3	147
実施例 6	0.4	93	2.4	547

## 産業上の利用可能性

[0039] 本発明によれば、極めて簡便な構造を有し製造が容易なスパイラル型分離膜モジュールと簡便なファンや真空ポンプとを組合せることによって、分離効率よく酸素富化空気を得ることができる。



### 請求の範囲

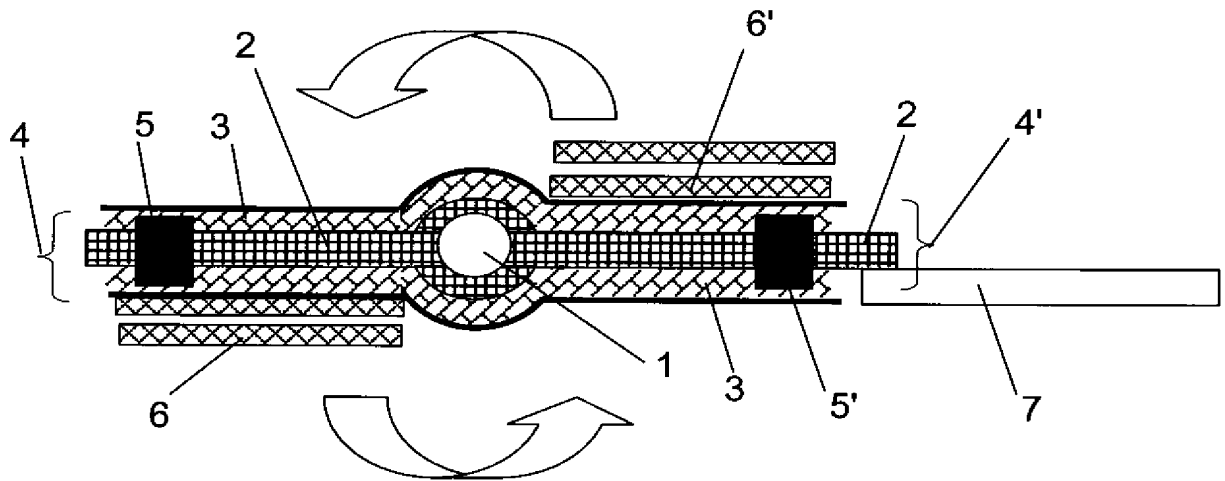
- [1] 透過気体を集めて排出する芯管の中空部に連通した透過気体流路となる透過側スペーサを2枚の平膜状気体分離膜の間に挟んで一組とした積層体と、原料気体流路となる供給側スペーサとを、交互に重なるように前記芯管の周りにスパイラル状に巻回して構成した気体分離膜モジュールを用い、最大送風量および最大静圧を気体分離膜の有効膜面積で割った値がそれぞれ $100\text{m}^3/\text{min}\cdot\text{m}^2$ 以下および $4000\text{Pa}/\text{m}^2$ 以下となるような送風手段によって原料気体流路内に空気を流しながら、芯管の中空部を減圧手段によって $95\text{kPaA}$ 以下に減圧することによって、芯管の中空部から酸素富化空気を分離回収することを特徴とする空気から酸素富化空気を分離回収する方法。
- [2] 前記気体分離膜モジュールが、透過気体を集めて排出する芯管の中空部に連通した透過気体流路となる透過側スペーサを2枚の平膜状気体分離膜の間に挟んで一組とした積層体を複数組備え、前記複数組の各積層体と原料気体流路となる供給側スペーサとを、交互に重なるように前記芯管の周りにスパイラル状に巻回して構成されることを特徴とする請求項1記載の方法。
- [3] 前記気体分離膜モジュールの透過側スペーサと供給側スペーサとの厚さの比が、 $1:2\sim 1:10$ であることを特徴とする請求項1または2記載の方法。
- [4] 透過気体を集めて排出する芯管の中空部に連通した透過気体流路となる透過側スペーサを2枚の平膜状気体分離膜の間に挟んで一組とした積層体と、原料気体流路となる供給側スペーサとを、交互に重なるように前記芯管の周りにスパイラル状に巻回して構成した気体分離膜モジュールと、  
最大送風量および最大静圧を前記気体分離膜の有効膜面積で割った値がそれぞれ $100\text{m}^3/\text{min}\cdot\text{m}^2$ 以下および $4000\text{Pa}/\text{m}^2$ 以下となる、前記原料気体流路内に空気を流す送風手段と、  
前記芯管の中空部を減圧手段によって $95\text{kPaA}$ 以下に減圧し、前記芯管の中空部から酸素富化空気を分離回収する減圧手段と  
を有する酸素富化空気分離回収装置。
- [5] 前記気体分離膜モジュールが、透過気体を集めて排出する芯管の中空部に連通

した透過気体流路となる透過側スペーサを2枚の平膜状気体分離膜の間に挟んで一組とした積層体を複数組備え、前記複数組の各積層体と原料気体流路となる供給側スペーサとを、交互に重なるように前記芯管の周りにスパイラル状に巻回して構成されることを特徴とする請求項4記載の装置。

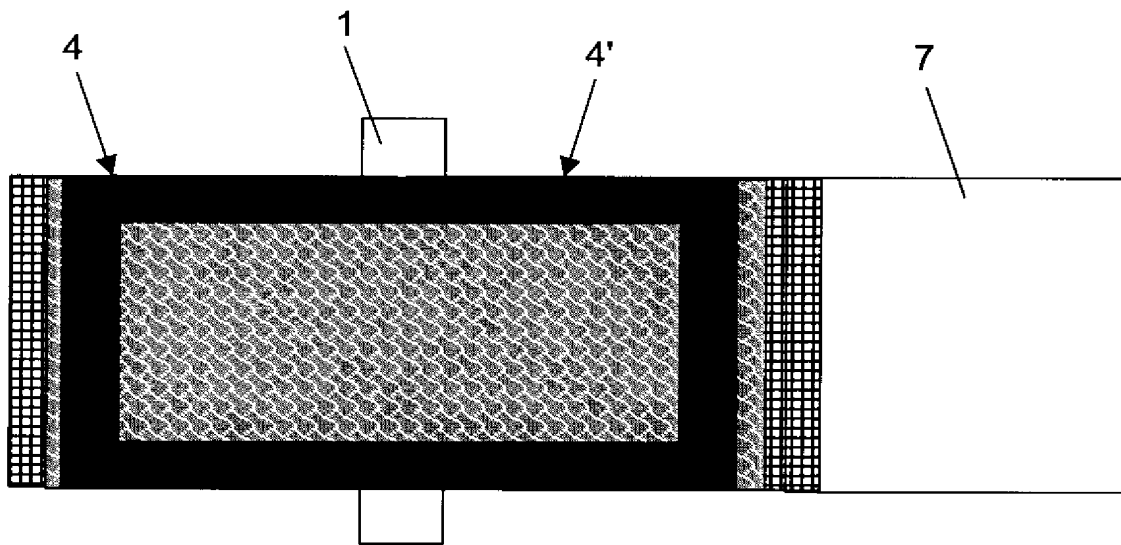
[6] 前記気体分離膜モジュールの透過側スペーサと供給側スペーサとの厚さの比が、1:2〜1:10であることを特徴とする請求項4または5記載の方法。

[7] 透過気体を集めて排出する芯管の中空部に連通した透過気体流路となる透過側スペーサを2枚の平膜状気体分離膜の間に挟んで一組とした積層体を複数組備え、前記複数組の各積層体と原料気体流路となる供給側スペーサとを交互に重なるように前記芯管の周りにスパイラル状に巻回して構成され、更に供給側スペーサと透過側スペーサとの厚さの比が1:2〜1:10である気体分離膜モジュールであつて、原料気体流路に空気を供給し芯管の中空部を減圧にして前記中空部から酸素富化空気を分離回収するために使用される気体分離膜モジュール。

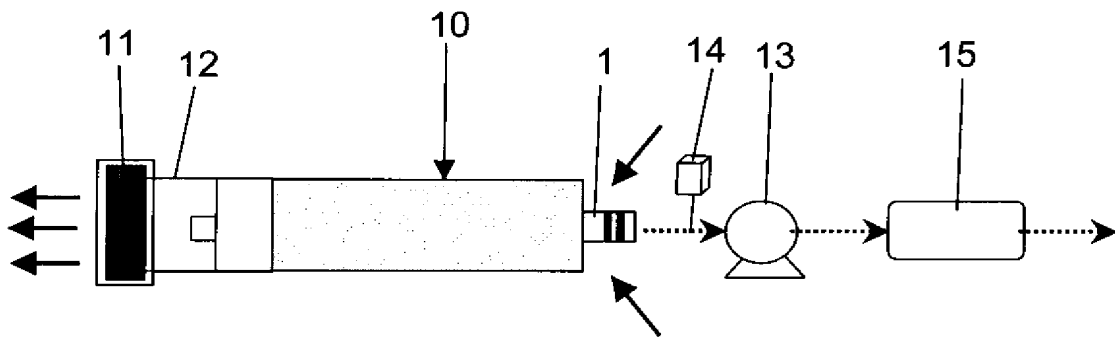
[[図1]]



[[図2]]



[図3]



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/002590

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl.<sup>7</sup> B01D53/22, B01D63/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> B01D53/22, B01D63/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPIL

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	Microfilm of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No. 101845/1988 (Laid-open No. 25019/1990) (Toray Industries, Inc.), 19 February, 1990 (19.02.90), Full text; Figs. 1 to 5 (Family: none)	1-7
A	JP 62-1405 A (Toray Industries, Inc.), 07 January, 1987 (07.01.87), Full text; Figs. 1 to 3 (Family: none)	1-7

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date  
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
23 March, 2005 (23.03.05)

Date of mailing of the international search report  
05 April, 2005 (05.04.05)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/002590

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2-124702 A (Nitto Denko Corp.), 14 May, 1990 (14.05.90), Page 2, lower right column, lines 6 to 16; drawings (Family: none)	1-7
A	JP 3-28104 A (Toray Industries, Inc.), 06 February, 1991 (06.02.91), Page 2, lower right column, line 10 to page 3, upper right column, line 4; Figs. 1 to 4 (Family: none)	1-7

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> B01D53/22, B01D63/10

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> B01D53/22, B01D63/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996  
 日本国公開実用新案公報 1971-2005  
 日本国登録実用新案公報 1994-2005  
 日本国実用新案登録公報 1996-2005

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPIL

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	日本国実用新案登録出願63-101845号 (日本国実用新案登録出願公開2-25019号) の願書に添付した明細書及び図面の内容を撮影したマイクロフィルム (東レ株式会社) 1990. 02. 19, 全文, 第1-5図 (ファミリーなし)	1-7
A	JP 62-1405 A (東レ株式会社) 1987. 01. 07, 全文, 第1-3図 (ファミリーなし)	1-7

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

23. 03. 2005

国際調査報告の発送日

05. 4. 2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

金 公 彦

4D

8925

電話番号 03-3581-1101 内線 3421

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2-124702 A (日東電工株式会社) 1990. 05. 14, 第2頁右下欄第6行～第16行, 図面 (ファミリーなし)	1-7
A	JP 3-28104 A (東レ株式会社) 1991. 02. 06, 第2頁右下欄第10行～第3頁右上欄第4行, 第1-4図 (ファミリーなし)	1-7